

特 許 協 力 条 約

PCT

特許性に関する国際予備報告（特許協力条約第二章）

（法第12条、法施行規則第56条）

〔PCT36条及びPCT規則70〕

REC'D 14 APR 2005

WIPO

PCT

| | | |
|---|------------------------------------|---------------------------|
| 出願人又は代理人 の書類記号 H2012-01 | 今後の手続きについては、様式PCT/IPEA/416を参照すること。 | |
| 国際出願番号 PCT/J P 2004/000463 | 国際出願日 (日.月.年) 21.01.2004 | 優先日 (日.月.年) 22.01.2003 |
| 国際特許分類 (IPC) Int. Cl ⁷ . H01M 4/02, 4/04, 4/58, 4/62, 10/40 | | |
| 出願人 (氏名又は名称) 日立マクセル株式会社 | | |

1. この報告書は、PCT35条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。
法施行規則第57条（PCT36条）の規定に従い送付する。

2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 6 ページからなる。

3. この報告には次の附属物件も添付されている。

a ☒ 附属書類は全部で 5 ページである。

☐ 補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面の用紙（PCT規則70.16及び実施細則第607号参照）

☐ 第I欄4.及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙

b ☐ 電子媒体は全部で (電子媒体の種類、数を示す)。
配列表に関する補充欄に示すように、コンピュータ読み取り可能な形式による配列表又は配列表に関連するデータを含む。（実施細則第802号参照）

4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

☒ 第I欄 国際予備審査報告の基礎

☐ 第II欄 優先権

☒ 第III欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成

☒ 第IV欄 発明の単一性の欠如

☒ 第V欄 PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明

☐ 第VI欄 ある種の引用文献

☐ 第VII欄 国際出願の不備

☐ 第VIII欄 国際出願に対する意見

| | | |
|---|------------------------------|-------------|
| 国際予備審査の請求書を受理した日 18.11.2004 | 国際予備審査報告を作成した日 04.04.2005 | |
| 名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 | 特許庁審査官 (権限のある職員) 植 前 充 司 | 4 X 9 4 4 5 |
| | 電話番号 03-3581-1101 内線 3477 | |

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (2004年1月)

第 I 欄 報告の基礎

1. この国際予備審査報告は、下記に示す場合を除くほか、国際出願の言語を基礎とした。

☐ この報告は、_____ 語による翻訳文を基礎とした。

それは、次の目的で提出された翻訳文の言語である。

- ☐ PCT規則12.3及び23.1(b)という国際調査
☐ PCT規則12.4という国際公開
☐ PCT規則55.2又は55.3という国際予備審査

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 1-16 ページ、出願時に提出されたもの
 第 _____ ページ*、 _____ 付で国際予備審査機関が受理したもの
 第 _____ ページ*、 _____ 付で国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 2-5, 8-11, 14-17 項、出願時に提出されたもの
 第 _____ 項*、PCT19条の規定に基づき補正されたもの
 第 1, 6, 7, 13, 18, 19 項*、18.11.2004 付で国際予備審査機関が受理したもの
 第 _____ 項*、 _____ 付で国際予備審査機関が受理したもの

☒ 図面

第 1/4-4/4 ページ/図、出願時に提出されたもの
 第 _____ ページ/図*、 _____ 付で国際予備審査機関が受理したもの
 第 _____ ページ/図*、 _____ 付で国際予備審査機関が受理したもの

☐ 配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☒ 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 _____ ページ
☒ 請求の範囲 第 12 項
☐ 図面 第 _____ ページ/図
☐ 配列表(具体的に記載すること) _____
☐ 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること) _____

4. ☐ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 第 _____ ページ/図
☐ 配列表(具体的に記載すること) _____
☐ 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること) _____

* 4. に該当する場合、その用紙に“superseded”と記入されることがある。

第Ⅲ欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解の不作成

1. 次に関して、当該請求の範囲に記載されている発明の新規性、進歩性又は産業上の利用可能性につき、次の理由により審査しない。

☐ 国際出願全体

☒ 請求の範囲 6, 18, 19

理由:

☐ この国際出願又は請求の範囲 _____ は、国際予備審査をすることを要しない次の事項を内容としている（具体的に記載すること）。

☐ 明細書、請求の範囲若しくは図面（次に示す部分）又は請求の範囲 _____ の記載が、不明確であるため、見解を示すことができない（具体的に記載すること）。

☐ 全部の請求の範囲又は請求の範囲 _____ が、明細書による十分な裏付けを欠くため、見解を示すことができない。

☒ 請求の範囲 6, 18, 19 について、国際調査報告が作成されていない。

☐ スクレオチド又はアミノ酸の配列表が、実施細則の附属書C（塩基配列又はアミノ酸配列を含む明細書等の作成のためのガイドライン）に定める基準を、次の点で満たしていない。

書面による配列表が

☐

提出されていない。

コンピュータ読み取り可能な形式による配列表が

☐

所定の基準を満たしていない。

☐

提出されていない。

☐

所定の基準を満たしていない。

☐ コンピュータ読み取り可能な形式によるスクレオチド又はアミノ酸の配列表に関連するテーブルが、実施細則の附属書Cの2に定める技術的な要件を、次の点で満たしていない。

☐ 提出されていない。

☐ 所定の技術的な要件を満たしていない。

☒ 詳細については補充欄を参照すること。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

| | | | |
|---------------|-------|-------------------------|---|
| 新規性(N) | 請求の範囲 | <u>1-5, 7-11, 13-17</u> | 有 |
| | 請求の範囲 | _____ | 無 |
| 進歩性(IS) | 請求の範囲 | _____ | 有 |
| | 請求の範囲 | <u>1-5, 7-11, 13-17</u> | 無 |
| 産業上の利用可能性(IA) | 請求の範囲 | <u>1-5, 7-11, 13-17</u> | 有 |
| | 請求の範囲 | _____ | 無 |

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

[文献一覧] 下記の文献1-4, 8は国際調査報告で引用した文献である。

下記の文献5-7は今回新たに引用した文献である。

1. JP 2001-135304 A, (九州電力株式会社), 2001. 05. 18, 請求項1-5, 段落0025, 0026, 実施例 (ファミリーなし)
2. JP 10-241683 A, (三菱電線工業株式会社), 1998. 09. 11, 請求項1-4, 段落0007-0012 実施例 (ファミリーなし)
3. JP 8-180873 A, (ソニー株式会社), 1996. 07. 12, 請求項1-4, 実施例及び表 1 (ファミリーなし)
4. JP 9-27314 A, (松下電器産業株式会社), 1997. 01. 28, 請求項1-4, 段落0009, 実施例 (ファミリーなし)
5. JP 2001-250536 A, (松下電器産業株式会社), 2001. 09. 14 請求項1-3, 明細書全体 (ファミリーなし)
6. JP 2002-246020 A, (ソニー株式会社), 2002. 08. 30 段落0111, 0112など (ファミリーなし)
7. JP 2002-313323 A, (株式会社豊田中央研究所), 2002. 10. 25 請求項1-4, 実施など (ファミリーなし)
8. JP 2000-138061 A, (日本電気株式会社), 2000. 05. 16, 請求項1, 段落0026 (ファミリーなし)

補充欄

いずれかの欄の大きさが足りない場合

第 III 欄の続き

18. 11. 2004 付けの書簡により補正された請求の範囲のうち、第 6、18 項は、負極の塗膜密度に関する技術的事項を、また、第 19 項は、非水電解質にビニレンカーボネートを含むこととの技術的事項を、それぞれ新たに導入するものであって、これらの技術的事項については、先の国際調査報告において調査報告が作成されていない技術的事項である。

補充欄

いずれかの欄の大きさが足りない場合

第 V 欄の続き

[説明]

請求の範囲第1, 3-5, 7, 9-11, 13, 15-17項は、文献1-7の記載から進歩性を有さない。文献1-4にはそれぞれ、球状黒鉛と扁平状黒鉛を混合したものを負極に用いたリチウム二次電池に関して記載されており、粒径範囲においても本願発明と重複する範囲のものが示されており、結合剤として水性樹脂とゴム系樹脂を併用することについての記載はないものの、文献5-7に例示されるように、リチウム二次電池負極の結合剤として水性樹脂とゴム系樹脂を併用し用いることは周知の技術にすぎない。

また、c軸方向の結晶子の大きさ、タップ密度、ラマンスペクトルによるパラメータ、二次粒子となった際の二次粒子径などについての記載は認められないものの、本願発明と文献1-4にそれぞれ記載された発明はともに、形状・粒子径の異なる複数種の黒鉛を併用した際の効果をねらったものであり、また、本願の明細書全体を精査しても、c軸方向の結晶子の大きさ、タップ密度、ラマンスペクトルによるパラメータ、二次粒子となった際の二次粒子径について、格別の予期できない効果が奏されるものと認められる記載がないことから、文献1-4にそれぞれ記載された炭素材料においても測定すれば自ずと満たされる、あるいは、実施にあたって適宜なし得る設計的事項にすぎないものと認められる。

請求の範囲第2, 8, 14項は、文献1-8の記載から進歩性を有しない。黒鉛材料の表面に予め非黒鉛性炭素被覆を施すとよいことは文献7において公知である。

請 求 の 範 囲

1. (補正後) 負極活物質と結合剤とを含むリチウム二次電池用負極であって、
- 5 前記結合剤が、水性樹脂とゴム系樹脂とを含み、
前記負極活物質が、黒鉛Aと黒鉛Bとを含み、
前記黒鉛Aの一次粒子の形状が、球状または楕円状であり、
前記黒鉛Aの一次粒子の平均粒径が、 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $30\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、
- 10 前記黒鉛Aのc軸方向の結晶子の大きさおよびタップ密度が、それぞれ 100 nm 未満、 1.0 g/cm^3 以上であり、
前記黒鉛Bの一次粒子の形状が、扁平状であり、
前記黒鉛Bの一次粒子の平均粒径が、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、
- 15 前記黒鉛Bのc軸方向の結晶子の大きさが、 100 nm 以上であることを特徴とするリチウム二次電池用負極。
2. 前記黒鉛Aの表面の少なくとも一部が、さらに非黒鉛性炭素で被覆されている請求項1に記載のリチウム二次電池用負極。
3. 波長 $5145\text{ }\text{\AA}$ のArレーザーで励起させたときの前記黒鉛Aの
20 ラマンスpekトルのR値 $[R = I_{1350} / I_{1580}]$ (I_{1350} は 1350 cm^{-1} 付近のラマン強度、 I_{1580} は 1580 cm^{-1} 付近のラマン強度)が、 0.4 以上である請求項1に記載のリチウム二次電池用負極。
4. 前記黒鉛Bの一次粒子が集合または結合して二次粒子を形成し、
前記二次粒子の平均粒径が $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $30\text{ }\mu\text{m}$ 以下である請求項1に
25 記載のリチウム二次電池用負極。
5. 前記黒鉛Aの重量割合が、前記黒鉛Aと前記黒鉛Bとの合計重量

を基準にして、10重量%以上90重量%以下である請求項1に記載の
リチウム二次電池用負極。

6. (補正後) 前記リチウム二次電池用負極の塗膜密度が、 1.5 g/cm^3 以上である請求項1に記載のリチウム二次電池用負極。

7. (補正後) 一次粒子の形状が球状または楕円状であり、一次粒子の平均粒径が $10 \mu\text{m}$ 以上 $30 \mu\text{m}$ 以下であり、 c 軸方向の結晶子の大ききさおよびタップ密度がそれぞれ 100 nm 未満、 1.0 g/cm^3 以上である黒鉛Aを準備する工程と

一次粒子の形状が扁平状であり、一次粒子の平均粒径が $1 \mu\text{m}$ 以上 $10 \mu\text{m}$ 以下であり、 c 軸方向の結晶子の大ききさが 100 nm 以上である黒鉛Bを準備する工程と、

10 前記黒鉛Aと前記黒鉛Bとを、水性樹脂とゴム系樹脂とを含む結合剤および溶媒の存在下で混合して塗料を調製する工程と、

前記塗料を集電体上に塗布して乾燥した後、加圧成形処理を施す工程とを含むリチウム二次電池用負極の製造方法。

8. 前記黒鉛Aの表面の少なくとも一部が、さらに非黒鉛性炭素で被覆されている請求項7に記載のリチウム二次電池用負極の製造方法。

9. 波長 5145 \AA のArレーザーで励起させたときの前記黒鉛AのラマンスペクトルのR値 $[R = I_{1350}/I_{1580}]$ (I_{1350} は 1350 cm^{-1} 付近のラマン強度、 I_{1580} は 1580 cm^{-1} 付近のラマン強度)が、 0.4 以上である請求項7に記載のリチウム二次電池用負極の製造方法。

10. 前記黒鉛Bの一次粒子が集合または結合して二次粒子を形成し、前記二次粒子の平均粒径が $10 \mu\text{m}$ 以上 $30 \mu\text{m}$ 以下である請求項7に記載のリチウム二次電池用負極の製造方法。

11. 前記黒鉛Aの重量割合が、前記黒鉛Aと前記黒鉛Bとの合計重量を基準にして、 $10 \text{ 重量}\%$ 以上 $90 \text{ 重量}\%$ 以下である請求項7に記載のリチウム二次電池用負極の製造方法。

1 2. (削除)

1 3. (補正後) 正極と、負極と、非水電解質とを含むリチウム二次電池であって、

前記負極が、負極活物質と結合剤とを含み、

5 前記結合剤が、水性樹脂とゴム系樹脂とを含み、

前記負極活物質が、黒鉛 A と黒鉛 B とを含み、

前記黒鉛 A の一次粒子の形状が、球状または楕円状であり、

前記黒鉛 A の一次粒子の平均粒径が、 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $30\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、

10 前記黒鉛 A の c 軸方向の結晶子の大きさおよびタップ密度が、それぞれ 100 nm 未満、 1.0 g/cm^3 以上であり、

前記黒鉛 B の一次粒子の形状が、扁平状であり、

前記黒鉛 B の一次粒子の平均粒径が、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、

15 前記黒鉛 B の c 軸方向の結晶子の大きさが、 100 nm 以上であることを特徴とするリチウム二次電池。

1 4. 前記黒鉛 A の表面の少なくとも一部が、さらに非黒鉛性炭素で被覆されている請求項 1 3 に記載のリチウム二次電池。

20 1 5. 波長 $5145\text{ }\text{\AA}$ の Ar レーザーで励起させたときの前記黒鉛 A のラマンスペクトルの R 値 $[R = I_{1350} / I_{1580}]$ (I_{1350} は 1350 cm^{-1} 付近のラマン強度、 I_{1580} は 1580 cm^{-1} 付近のラマン強度) が、 0.4 以上である請求項 1 3 に記載のリチウム二次電池。

25 1 6. 前記黒鉛 B の一次粒子が集合または結合して二次粒子を形成し、前記二次粒子の平均粒径が $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $30\text{ }\mu\text{m}$ 以下である請求項 1 3 に記載のリチウム二次電池。

1 7. 前記黒鉛 A の重量割合が、前記黒鉛 A と前記黒鉛 B との合計重

量を基準にして、10重量%以上90重量%以下である請求項13に記載のリチウム二次電池。

18. (補正後) 前記負極の塗膜密度が、 1.5 g/cm^3 以上である請求項13に記載のリチウム二次電池。

- 5 19. (追加) 前記非水電解質が、ビニレンカーボネートを含む請求項13に記載のリチウム二次電池。